

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



(43)国際公開日
2003年1月23日 (23.01.2003)

PCT

(10)国際公開番号
WO 03/006550 A1

(51)国際特許分類7: C08L 67/04, C08J 5/18, C08K 5/103

(21)国際出願番号: PCT/JP02/06940

(22)国際出願日: 2002年7月9日 (09.07.2002)

(25)国際出願の言語: 日本語

(26)国際公開の言語: 日本語

(30)優先権データ:
特願2001-210247 2001年7月11日 (11.07.2001) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 三井
化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP];
〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
Tokyo (JP).

(72)発明者: および

(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 黒木 孝行
(KUROKI,Takayuki) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市
千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba (JP).
渡辺 孝行 (WATANABE,Takayuki) [JP/JP]; 〒299-0108

千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内
Chiba (JP). 北原 泰広 (KITAHARA,Yasuhiro) [JP/JP];
〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学
株式会社内 Chiba (JP). 竹原 明宣 (TAKEHARA,Aki-
nori) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸
3番地 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 大淵 省二
(OBUCHI,Shoji) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市
千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba (JP).

(74)代理人: 苗村 新一 (NAEMURA,Shinichi); 〒221-0056
神奈川県横浜市神奈川区金港町5番地ノ36 東興
ビル5階 Kanagawa (JP).

(81)指定国(国内): CN, JP, KR, US.

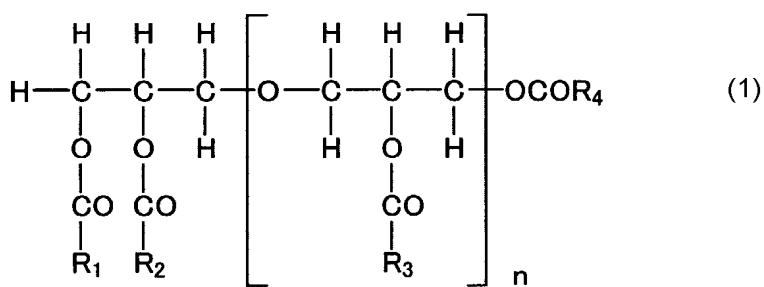
(84)指定国(広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB, IT, NL).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイドスノート」を参照。

(54)Title: ALIPHATIC POLYESTER RESIN COMPOSITION AND FILMS CONTAINING THE SAME

(54)発明の名称: 脂肪族ポリエステル樹脂組成物及びそれを含んでなるフィルム



(57)Abstract: An aliphatic polyester resin composition comprising 100 parts by weight of an aliphatic polyester resin and 10 to 60 parts by weight of at least one compound represented by the general formula (1); films made of the composition; and packages made by using the films: (1) (wherein n is an integer of 1 to 9; and R₁ to R₄ are each independently C₁₋₁₇ alkyl, with the proviso that when n is 2 or above, R₃'s may be different from each other). The films keep degradability

under natural environment conditions which is inherent in lactate polymers, have excellent heat resistance, flexibility, transparency, and close adhesion, and do not cause the bleeding of a plasticizer, thus being suitably usable as packaging films for food, electronic devices, medical supplies, chemicals, cosmetics and so on, agricultural films, films for building and engineering, and materials for various uses including adhesive tapes.

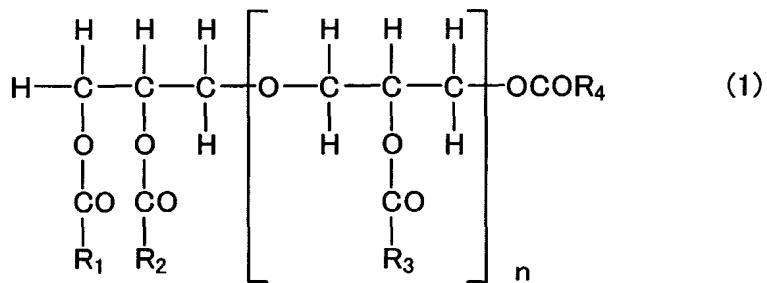
[続葉有]

WO 03/006550 A1



(57) 要約:

本発明は、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対し、式(1)



(式中、nは1～9の整数、R₁～R₄はそれぞれ独立に炭素数1～17のアルキル基であり、nが2以上であるとき、R₃は各ユニットで異なっていてもよい)で表される化合物の少なくとも1つ10～60重量部を含んでなる脂肪族ポリエステル樹脂組成物、該組成物からなるフィルム及び該フィルムを用いた包装体を提供する。本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、乳酸系ポリマーが本来有する自然環境下での分解性を維持し、優れた耐熱性、柔軟性、透明性及び密着性を有し、しかも表面に可塑剤がブリードアウトすることがない。そのため、食品、電子、医療、薬品、化粧品等の各種包装用フィルム、農業用フィルム、土建・建築用フィルム、粘着テープ等の広範囲における資材として好適に使用し得る。

明 紹 書

脂肪族ポリエステル樹脂組成物及びそれを含んでなるフィルム

5 技術分野

本発明は、脂肪族ポリエステル樹脂組成物、該樹脂組成物を含有してなるフィルム、及び該フィルムを用いた包装体に関する。詳しくは、本発明は、自然環境下で分解性を有し、特定の可塑剤を含有する脂肪族ポリエステル樹脂組成物、該樹脂組成物を含有してなる、優れた耐熱性、透明性、柔軟性及び密着性を有し、
10 しかもフィルム表面に可塑剤をブリードアウトすることのない脂肪族ポリエステルフィルム、及び該脂肪族ポリエステルフィルムを用いた包装体に関する。

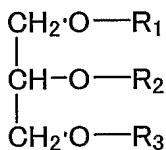
背景技術

近年、プラスチックの廃棄物問題がクローズアップされている。包装材料のようなプラスチック廃棄物は、使用者が使い終わった後、廃棄され、焼却処理されるか、または埋め立て等により処分されていた。しかし、このようなプラスチック廃棄物を焼却処理した場合、燃焼熱が高く、焼却炉の耐久性の問題や、ポリ塩化ビニルのようなものでは有害なガスを発生し、公害問題を引き起こしていた。
さらに、埋め立てた場合には、プラスチック成形物がそのまま分解せずに、原形
20 のままゴミとして半永久的に残り、自然環境への影響が問題となっていた。このような状況の中、自然環境下で微生物により完全に消費され、自然的副産物である炭酸ガスや水に分解する種々の生分解性プラスチックが発明され実用レベルの段階に入っている。

そのような生分解性プラスチックとして、ポリ乳酸または乳酸とその他のヒドロキシカルボン酸を主成分とする熱可塑性ポリマーからなる組成物が知られており、例えば、それらは、機械的強度が高く、実用に耐えうる耐久性を示す容器やフィルムに加工できることが知られている。しかし、該ポリマーは弾性率および

剛性が高く、柔軟性に乏しいため、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等の軟質フィルムが使用されている用途には適していなかった。

一般に、樹脂を軟質化する方法として、可塑剤を添加する方法が知られ、過去に様々な可塑剤を用いた軟質化の検討がなされている。例えば、特開2000-5302956号公報（EP 1029890A）には、脂肪族ポリエステルに、可塑剤として、下記式で表される化合物（A）



（式中、R₁、R₂及びR₃の少なくとも1つは炭素数6～18のアシル基であり、残りが水素原子又はアセチル基である）

10 で表される化合物（A）、及びグリセリン2～10分子の縮合物と炭素数6～18のカルボン酸との反応生成物である化合物である化合物（B）から選ばれた少なくとも1種の化合物、を含む脂肪族ポリエステル組成物が記載されている。

そしてそこには、化合物（A）の具体例として、グリセリンジアセトモノカブリレート、グリセリンジアセトモノラウレート、グリセリンジアセトモノオレートが記載され、化合物（B）は、グリセリン縮合物1モルに対し、炭素数6～18のカルボン酸0.8～1.2モルを反応させて得られる化合物であり、具体例として、テトラグリセリンモノカブリレート、デカグリセリンモノラウレート、デカグリセリンオレートが記載されている。

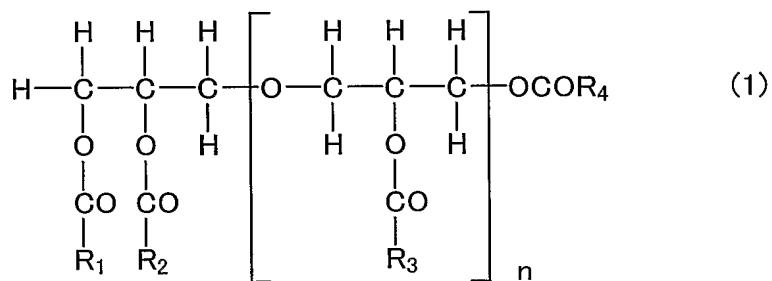
そして、該組成物から得られる脂肪族ポリエステルフィルムが、優れた耐熱性及び柔軟性を有し、しかも可塑剤がブリードアウトしないことが記載されている。

しかし、これらの化合物を可塑剤として用いたフィルムは、優れた耐熱性及び柔軟性を有し、しかも可塑剤がブリードアウトしないものであるが、さらにガラス容器等の被包装物をフィルムで包装したときのフィルムと被包装物との間の密着力が高いフィルムが求められていた。

発明の開示

従って、本発明の課題は、自然環境下で分解性を有し、特定の可塑剤を含有する脂肪族ポリエステル樹脂組成物、該樹脂組成物を含有してなる、優れた耐熱性、透明性、柔軟性及び密着性を有し、しかもフィルム表面に可塑剤をブリードアウトすることのない脂肪族ポリエステルフィルム、及び該脂肪族ポリエステルフィルムを用いた包装体を提供することにある。

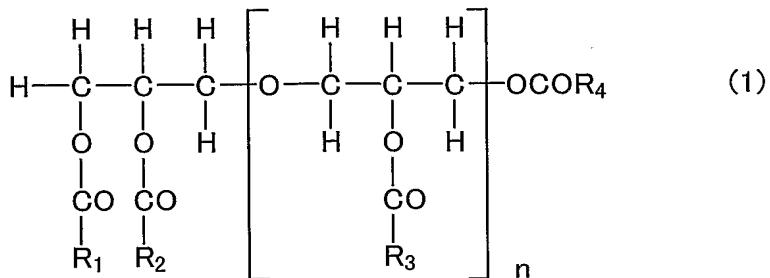
本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、脂肪族ポリエステル樹脂に対し、可塑剤として、式（1）



（式中、nは1～9の整数、R₁～R₄はそれぞれ独立に炭素数1～17のアルキル基であり、nが2以上であるとき、R₃は各ユニットで異なっていてもよい）で表される化合物を含有する樹脂組成物を用いて得られる脂肪族ポリエステルフィルムは、可塑剤がブリードアウトすることがなく、優れた透明性、耐熱性、柔軟性及び密着性を有することを見出し、本発明に到った。

即ち、本発明は、以下の〔1〕～〔10〕により特定される。

〔1〕 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対し、式（1）



（式中、nは1～9の整数、R₁～R₄はそれぞれ独立に炭素数1～17のアルキル基であり、nが2以上であるとき、R₃は各ユニットで異なっていてもよい）

で表される化合物の少なくとも 1つ 10～60重量部を含んでなる脂肪族ポリエスチル樹脂組成物。

[2] [1] 記載の脂肪族ポリエスチル樹脂組成物からなるフィルムの層を少なくとも 1層有する、脂肪族ポリエスチルフィルム。

5 [3] 脂肪族ポリエスチルフィルムの、20℃における貯蔵弾性率（E'）が $1 \times 10^7 \sim 2 \times 10^9 \text{ Pa}$ であり、貯蔵弾性率（E'）に対する損失弾性率（E''）の比（E''/E'）である損失正接（tan δ）が0.1～1.0である、[2] 記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

10 [4] 脂肪族ポリエスチル樹脂が、ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸との共重合体から選ばれた少なくとも 1種のポリエスチルである、
[2] 又は [3] 記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

[5] ポリエスチルフィルムのヘイズが、膜厚 $10 \mu\text{m}$ で、0.05～3%である、[2]～[4] の何れか 1 に記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

15 [6] ポリエスチルフィルムの耐熱温度が100～170℃である、[2]～[4] の何れか 1 つに記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

[7] ポリエスチルフィルムの結晶化度が10～60%である、[2]～[4] の何れか 1 つに記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

[8] ポリエスチルフィルムの厚みが $5 \sim 100 \mu\text{m}$ である、[2]～[4] の何れか 1 つに記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

20 [9] ポリエスチルフィルムが包装用フィルムである、[2]～[4] の何れか 1 つに記載の脂肪族ポリエスチルフィルム。

[10] [2]～[4] の何れか 1 つに記載の脂肪族ポリエスチルフィルムを用いて、被包装物を包装した包装体。

なお、本発明における貯蔵弾性率（E'）、及び貯蔵弾性率（E'）に対する損失弾性率（E''）の比（E''/E'）である損失正接（tan δ）は、以下の方法により測定した値を意味する。

すなわち、動的固体粘弹性測定装置〔レオメトリクス社製、型式：RSA II〕

を用いて、長さ 40 mm (MD 方向)、幅 5 mm (TD 方向)、平均厚みが 5 ~ 15 μm のフィルムについて、測定温度範囲 -100 ~ 230 °C、昇温速度 5 °C / min、周波数 1 Hz の条件下で測定を行ない、20 °C における貯蔵弾性率 (E') を読み取り、損失弾性率 (E'') と貯蔵弾性率 (E')との比 (E'' / E') である $\tan \delta$ を算出する。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明に係る脂肪族ポリエステル樹脂組成物は、脂肪族ポリエステル樹脂に、
10 可塑剤として前記式 (1) の化合物の少なくとも 1 種の化合物を添加、混合することにより製造される。

本発明に用いる脂肪族ポリエステル樹脂は、分子中に乳酸単位を、少なくとも 40 モル%、好ましくは 50 モル%、より好ましくは 60 モル% 含む脂肪族ポリエスチル樹脂である。具体的には、(1) ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸とのコポリマー、(2) 多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエスチル樹脂、(3) 脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位、及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエスチル樹脂、及び(4) これらの混合物である。
15 以下、これらを総称して乳酸系ポリマーという。これらの内、得られるフィルムの透明性、加水分解性等を考慮すると、ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸とのコポリマーが好ましい。

乳酸には、L-体とD-体とが存在するが、本発明において単に乳酸という場合は、特にことわりがない限り、L-体とD-体との両者を指すこととする。また、ポリマーの分子量は特にことわりがない限り、重量平均分子量を指すこととする。本発明に用いるポリ乳酸としては、構成単位が L-乳酸のみからなるポリ (L-乳酸)、D-乳酸のみからなるポリ (D-乳酸)、及び L-乳酸単位と D-乳酸単位とが種々の割合で存在するポリ (DL-乳酸) 等が挙げられる。乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマーの他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸

としては、グリコール酸、3-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ吉草酸、5-ヒドロキシ吉草酸、6-ヒドロキシカプロン酸等が挙げられる。

本発明に係るポリ乳酸の製造方法として、L-乳酸、D-乳酸、またはDL-5乳酸を直接脱水縮合する方法、これら各乳酸の環状2量体であるラクチドを開環重合する方法等が挙げられ、何れの方法によって製造されたものでもよい。開環重合は、高級アルコール、ヒドロキシカルボン酸等の水酸基を有する化合物の存在下で行ってもよい。乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマーの製造方法として、上記各乳酸と上記脂肪族ヒドロキシカルボン酸を脱水重縮合する方法、上記各乳酸の環状2量体であるラクチドと上記脂肪族ヒドロキシカルボン酸の環状体を開環共重合する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。

多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル樹脂の製造に用いる多官能多糖類としては、例えば、セルロース、硝酸セルロース、メチルセルロース、15エチルセルロース、セルロイド、ビスコースレーヨン、再生セルロース、セロハン、キュプラ、銅アンモニアレーヨン、キュプロファン、ベンベルグ、ヘミセルロール、デンプン、アクロペクチン、デキストリン、デキストラン、グリコーゲン、ペクチン、キチン、キトサン、アラビアガム、グーガム、ローカストビーンガム、アカシアガム等、及びこれらの混合物、及びこれらの誘導体が挙げられる。これらの内で特に酢酸セルロース、エチルセルロースが好ましい。

多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル樹脂の製造方法として、上記多官能多糖類と上記ポリ乳酸又は乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマー等を反応する方法、上記多官能多糖類と上記各乳酸、環状エステル類等を反応する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。

25 脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル樹脂の製造に用いる脂肪族多価カルボン酸としては、例えば、シュウ酸、コハク酸、マロン酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリシン酸、スペリ

ン酸、アゼライン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸等、及びこれらの無水物が挙げられる。これらは混合物であってもよい。また、脂肪族多価アルコールとしては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、テトラメチレングリコール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール等が挙げられる。

脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル樹脂の製造方法として、上記脂肪族多価カルボン酸及び上記脂肪族多価アルコールと、上記ポリ乳酸又は乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸のコポリマー等を反応する方法、上記脂肪族多価カルボン酸及び上記脂肪族多価アルコールと、上記各乳酸、環状エステル類等を反応する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。

本発明に係る脂肪族ポリエステル樹脂の分子量は、得られるフィルムの加工性、強度及び分解性に影響を及ぼす。分子量が低いと得られるフィルムの強度が低下し、使用する際に張力で破断することがある。また、分解速度が早くなる。逆に分子量が高いと加工性が低下し、フィルム製膜が困難となる。かかる点を考慮すると、脂肪族ポリエステル樹脂の分子量は、約1万～約100万の範囲が好ましい。さらに好ましい範囲は約10万～約30万である。

本発明において、脂肪族ポリエステル樹脂の可塑剤として、前記式（1）で表される化合物の少なくとも1種の化合物が用いられる。式（1）で表される化合物は、グリセリン縮合物のすべての水酸基を、水酸基の数に見合った量以上の量のアシル化剤を用いて、常法によりアシル化（エステル化）することにより得られる。このような方法で得られたグリセリン縮合物のアシル化物の水酸基価は、20以下であり、好ましくは5以下である。式（1）で表される化合物の製造に用いられるグリセリン縮合物としては、グリセリンの2～10分子が縮合した縮合物であり、ジグリセリン、トリグリセリン、テトラグリセリン、デカグリセリ

ン等が挙げられる。また、アシル化剤としては、無水酢酸、炭素数1～18のカルボン酸クロライド等が挙げられる。

式(1)におけるnの値は、樹脂との相溶性、及び得られるフィルムの柔軟性に影響する。大きすぎると、樹脂との相溶性が悪くなり、また、得られるフィルムの弾性率が大きくなり、柔軟性が低下する。又、R₁～R₄のアルキル基の炭素数は、得られるフィルムの柔軟性に影響を及ぼす。アルキル基の炭素数が多すぎると、得られるフィルムの弾性率が大きくなり、柔軟性が低下する。かかる観点から、式(1)におけるnは、1～9の整数であり、好ましくは1～5である。また、R₁～R₄は、炭素数1～17のアルキル基であり、好ましくは炭素数1～5のアルキル基である。n及びR₁～R₄がこの範囲であるとき、式(1)で表される化合物と本発明に係る脂肪族ポリエステル樹脂との相溶性がよく、均一な樹脂組成物が得られ、該組成物から得られるフィルムが、優れた柔軟性を有することができる。

なお、R₁～R₄は、それぞれ同一のアルキル基でも良いし、異なるアルキル基でもよい。さらに、R₃は、各グリセリンユニットで異なっていてもよい。具体的な化合物としては、テトラアセチルジグリセリン、テトラオクタノイルジグリセリン、ペンタステアロイルトリグリセリン等が挙げられる。

可塑剤の添加量は、得られるフィルムの結晶化度、柔軟性、耐熱性、密着性等に影響を及ぼす。添加量が多すぎると結晶化度及び耐熱性が低下する。少なすぎると十分な柔軟性が得られない。かかる観点から、可塑剤としての上記式(1)の化合物の添加量は、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対し10～60重量部であり、好ましくは15～50重量部である。この範囲であるとき、得られるフィルムが適度の結晶化度を有し、優れた柔軟性と耐熱性を併せ持つとともに、良好な自己密着性及び被包装体との密着性を有することができる。

本発明の樹脂組成物には、その性質を損なわない範囲において、他の可塑剤、例えば、グリセリンの2～10の縮合物1モルに対し、炭素数6～18脂肪族カルボン酸0.8～1.2モルを反応させて得られる化合物を添加、混合すること

もできる。具体的な化合物としては、テトラグリセリンモノカプリレート、テトラグリセリンモノステアレート、テトラグリセリンモノオレート、ヘキサグリセリンモノラウレート、ヘキサグリセリンモノオレート、デカグリセリンモノプロピオネート、デカグリセリンモノラウレート、デカグリセリンモノベヘネート、
5 デカグリセリンモノステアレート、デカグリセリンモノオレート等が挙げられる。
代表的な市販品としては、理研ビタミン（株）製の商品名：ポエムJ－0381
（デカグリセリンモノオレート、水酸基価：529）、同商品名：ポエムJ－00
21（デカグリセリンモノラウレート、水酸基価：615）、同商品名：ポエムJ
－4581（テトラグリセリンモノオレート、水酸基価：250）等が挙げられ
る。添加してもよい量は、式（1）の化合物100重量部に対して、20重量
10 部以下である。

本発明の脂肪族ポリエステル樹脂組成物には、式（1）の化合物の他に、用途
に応じて、本発明の目的を損なわない範囲で、シリカ、炭酸カルシウム、チタニ
ア、マイカ、タルク等のアンチブロッキング剤；流動パラフィン、ポリエチレン
15 ワックス等の炭化水素類、ステアリン酸等の脂肪酸類、オキシ脂肪酸類、脂肪酸
アミド類、アルキレンビス脂肪酸アミド類、脂肪酸低級アルコールエステル類、
脂肪酸多価アルコールエステル類、脂肪酸ポリグリコールエステル類、脂肪族アル
コール類、多価アルコール類、ポリグリコール類、ステアリン酸カルシウム等
の金属石鹼類等の滑剤；脂肪酸塩類、高級アルコール硫酸エステル類、液体脂肪
20 油硫酸エステル塩類、脂肪族アミンおよび脂肪族アマイド硫酸塩類、脂肪族アル
コールリン酸エステル塩類、二塩基性脂肪酸エステルのスルホン酸塩類、脂肪族
アミドスルホン酸塩類、アルキルアリルスルホン酸塩類、脂肪族アミン塩類、第
4級アンモニウム塩類、アルキルピリジウム塩類、ポリオキシエチレンアルキル
エーテル類、ポリオキシエチレンアルキルフェノールエーテル類、ポリオキシエ
25 チレンアルキルエステル類、ソルビタンアルキルエステル類、ポリオキシエチ
ンソルビタンアルキルエステル類、イミダゾリン誘導体、高級アルキルアミン類
等の帶電防止剤；グリセリンモノステアレート等のグリセリン脂肪酸エステル、

ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノオレート等のソルビタン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル等の防曇剤；2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール類や、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン類、サリチル酸p-tert-ブチルフェニル等のサリチル酸誘導体等の紫外線吸収剤；パラメトキシフェノール等のフェノール系、トリフェニルホスファイト等のホスファイト系、2-メルカプトベンズイミダゾール等の硫黄系、フェニルナフチルアミン等のアミン系の熱安定剤；酸化防止剤；着色防止剤；硫酸バリウム、酸化チタン、カオリン、カーボンブラック等の充填剤、顔料；デカブロモジフェニルエーテル等のハロゲン系、三酸化アンチモン等のアンチモン系の難燃剤等の他の添加剤を添加してもよい。

本発明において、脂肪族ポリエステル樹脂に式(1)の可塑剤を添加、混合する方法としては、脂肪族ポリエステル樹脂と可塑剤、場合によっては他の添加剤を高速攪拌機または低速攪拌機などを用いて均一に混合した後、十分な混練能力を有する一軸あるいは多軸の押出機を用いて溶融混練する方法等を採用することが出来る。本発明に係る樹脂組成物の形状は、通常、ペレット、棒状、粉末等が好ましい。

次いで、本発明の脂肪族ポリエステルフィルム、及びその製造方法の一例について説明する。

本発明に係る樹脂組成物を、Tダイが装着された押出機を用いる溶融押出法によりフィルム状に成形する。好ましくは、得られたフィルムをロール延伸によって流れ方向（機械方向、以下、MD方向）に延伸した後、テンター延伸によって横方向（機械方向と直交する方向、以下、TD方向）に延伸する。延伸の順序は上記の逆でもよい。延伸後、緊張下で熱処理することにより脂肪族ポリエステル延伸フィルムが製造される。一軸延伸する場合は、MD方向、TD方向のいずれに延伸してもよい。

上記各種の添加剤を含む脂肪族ポリエステル樹脂組成物の溶融押出温度は、好

ましくは100～280℃、より好ましくは130～250℃の範囲である。成形温度が低いと成形安定性が得難く、また過負荷に陥り易い。逆に、成形温度が高いと脂肪族ポリエステルが分解することがあり、分子量低下、強度低下、着色等が起こるので好ましくない。

5 本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、MD方向及びTD方向の少なくとも一軸方向に、1.5～5倍延伸することが好ましい。更に好ましくは、MD方向及びTD方向に二軸延伸された二軸延伸フィルムである。延伸フィルムを製造する場合、延伸倍率が1.5倍未満であると、力学物性や寸法精度の経時安定性をもたらす結晶化が進行し難い。また、5倍を超えると、フィルムの柔軟性がなく
10 なると共に、延伸時にフィルム破れ等が生じ好ましくない。延伸温度は用いる脂肪族ポリエステル樹脂のガラス転移温度(T_g)～($T_g + 50$)℃の範囲が好ましい。さらに好ましくは、 T_g ～($T_g + 30$)℃の範囲である。延伸温度が
 T_g 未満では延伸が困難であり、($T_g + 50$)℃を超えると均一な延伸が困難となり好ましくない。また、耐熱性及び寸法安定性向上のため、延伸後緊張下にて
15 ($T_g + 10$)℃以上、融点未満の温度で熱処理を行う。この際、延伸、熱処理条件を変化させることにより、フィルムの結晶化度を制御することができる。

上記条件で延伸及び熱処理を施すことにより、結晶化度が10～60%である延伸フィルムが得られる。好ましい結晶化度は20～50%である。例えば、乳酸系ポリマー100重量部に対して、式(1)の化合物のうち、 R_1 ～ R_4 が全て
20 炭素数1のアルキル基、nが1である化合物を20重量部添加し、Tダイを用いて製膜した後、50℃にて、機械方向に2.5倍、幅方向に2.5倍(以下、 2.5×2.5 と略記する)に延伸する。その後、緊張下にて140℃で熱処理を行うことにより、結晶化度30%程度の延伸フィルムが得られる。

25 本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、目的に応じて工程条件を設定することにより、ロール状、テープ状、カットシート状、筒状(シームレス状)に製造することができる。

本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、ショッピングバッグ、ゴミ袋、コン

ポストバッグ、食品・菓子包装フィルム、食品包装用ラップフィルム、化粧品・香粧品用ラップフィルム、医薬品用ラップフィルム、生薬用ラップフィルム、肩こりや捻挫等に適用される外科用貼付薬用ラップフィルム、農業用・園芸用フィルム、農薬品用ラップフィルム、温室用フィルム、肥料用袋、ビデオやオーディオ等の磁気テープカセット製品包装用フィルム、フレキシブルディスク包装用フィルム、製版用フィルム、粘着テープ、防水シート、土嚢用袋、等として、好適に使用することができる。これらの用途の内、好ましくは包装用フィルムとして使用され、包装体が形成される。その場合の被包装物としては、野菜類、果物類、菓子類等の食品、化粧品、医薬品、農薬品、肥料、土壤、家庭ゴミ類、コンポスト、ビデオ、CD、MO、MD、DVD等の電子・電気製品等が挙げられる。本発明のポリエステルフィルムの厚みは用途に応じて適宜替え得るが、通常、5～1000 μmの範囲である。

本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、ヒートシール、高周波シールおよび溶断等の方法によって、袋状に加工することができる。例えば、カットシート状に製造されたフィルムを2つ折にし、折り目の側辺の2辺をフィルムのTg（ガラス転移温度）以上の温度のヒートシールバーを用いて、ヒートシールすることにより、袋が得られる。また、ロール状のフィルムを解反しながら、幅方向に2つ折にし、フィルムの融点以上の温度の溶断バーを用いて、長さ方向に一定間隔で溶断することにより、袋が得られる。また、筒状のフィルムを解反しながら、Tg以上の温度のヒートシールバーを用いて、長さ方向に一定間隔でヒートシールした後、シール部の直近を同間隔でカットすることにより、袋が得られる。

本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、必要に応じてフィルム表面に帯電防止性、防曇性、粘着性、ガスバリヤー性、密着性および易接着性等の機能を有する層をコーティングにより形成することができる。例えば、フィルムの片面あるいは両面に、帯電防止剤を含む水性塗工液を塗布、乾燥することによって帯電防止層を形成することができる。水性塗工液を塗布する方法は、公知の方法が適用できる。すなわち、ドクターブレード方式、スプレーコート方式、エアーナイフ

方式、リバースコート方式、キスコート方式、グラビアコート方式、マイヤーバー方式、ロールプラッシュ方式等が適用できる。

また、アクリル樹脂系粘着剤、例えば、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシリアクリレート等を主成分とし、他のビニル系モノマー⁵を共重合せしめたコポリマーを、有機溶剤中に均一に溶解した溶剤系および水中に粒子状に分散させた水エマルジョン系の塗布液を公知の方法でフィルムに塗布、乾燥させ、粘着性を付与することができる。

本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、必要に応じて、他樹脂およびフィルムをラミネートすることにより、帯電防止性、防曇性、粘着性、ガスバリヤー性、¹⁰密着性および易接着性等の機能を有する層をコーティングにより形成することができる。その際、押出ラミネート、ドライラミネート等の公知の方法を用いるこ¹⁵とができる。

本発明における脂肪族ポリエステルフィルムにおいては、20°Cにおける貯蔵弾性率(E')が $1 \times 10^7 \sim 2 \times 10^9 \text{ Pa}$ であり、良好な柔軟性を有する。また、¹⁵20°Cにおける損失正接($\tan \delta$)が0.1~1.0であり、後述の実施例に記載された方法で測定された密着力が 200 g/cm^2 以上であり、良好な自己密着性および被包装体等との密着性を有する。また、ヘイズが0.05~3%、耐熱温度が100~170°C、結晶化度が10~60%である。本発明の脂肪族²⁰ポリエステルフィルムを少なくとも一軸方向に延伸して得られる脂肪族ポリエス^{テル延伸}フィルムの特性についても上記とほぼ同様である。

実施例

以下、実施例を示して本発明についてさらに詳細に説明する。尚、実施例に示した結晶化度、貯蔵弾性率、 $\tan \delta$ 、ヘイズ、耐熱温度、密着性及びブリード²⁵アウトは、以下に示す方法で測定した。

(1) 結晶化度(%)

示差走査熱量計〔リガク(株)製、形式:TAS100〕を用い、融解曲線の

ピーク面積より、融解熱量 (ΔH) を求め、完全結晶の融解熱量 (ΔH_0) より下記数式により結晶化度 (X_c) を算出する。なお、標準物質としてはインジウムを用いる。

$$X_c = \Delta H / \Delta H_0$$

5 (2) 貯蔵弾性率 E' (Pa)、 $\tan \delta$

動的固体粘弾性測定装置 [レオメトリクス社製、型式：RSA II] を用いて、長さ 40 mm (MD 方向)、幅 5 mm (TD 方向)、平均厚みが 5～15 μm のフィルムについて、測定温度範囲 -100～230 °C、昇温速度 5 °C/min、周波数 1 Hz の条件下で測定を行ない、20 °Cにおける貯蔵弾性率 (E') を読み取り、損失弾性率 (E'') と貯蔵弾性率 (E') との比 (E''/E') である $\tan \delta$ を算出する。

(3) ヘイズ (%)

東京電色(株)製、ヘイズ Meter を使用して測定し、フィルムの厚み 10 μm の値に換算したヘイズ値 (%) を求める。

15 (4) 耐熱温度 (°C)

MD 方向 14 cm、TD 方向 3 cm のフィルムと同じ幅の板目紙をフィルムと重ねてフィルムの機械方向の両端部 2.5 cm の部分を粘着テープで板目紙と貼り合わせて固定したものを試料とする。板目紙で補強した試料フィルムのそれぞれの両端 2.5 cm の部分の上部を全幅にわたって治具に固定し、下端中央部に 10 g の荷重をかけ、一定温度に調整したエアーオーブン中に迅速に入れ、1 時間加熱したときの試料の切断の有無を調べる。試験温度は 5 °C 刻みに上昇させた。1 時間経過後、試料が切断しなかった場合は、温度を 5 °C 上げ前記の操作を繰り返す。試料が切断しない最高温度を耐熱温度とする。

(5) 密着力

25 機械方向：10 cm、幅方向：5 cm のフィルムをガラス板 (表面粗さ Ra = 0.7～1.5 nm、150 mm × 150 mm × 3.0 mm 厚) に、接触面積が 50 mm × 50 mm になるように乗せる。フィルムに重なるように 50 mm × 50 mm × 1 mm

厚のアルミ板を乗せ、その上にフィルムへの荷重が4KPa になるように重りを乗せ、10秒後にアルミ板および重りを取り除く。プッシュプルゲージ（アイコーエンジニアリング社製 プッシュプルゲージ9505A）の先端に取付けたクリップにて、フィルムの長手方向端部を持した後、200mm/m in. の速度で
5 プッシュプルゲージを引張り、密着力(せん断剥離力)を測定する。5回測定し、最大値および最小値をカットし、3回の平均値をもって測定値とする。

(6) ブリードアウト

機械方向10cm、幅方向10cmのフィルムを60°C、50%RH雰囲気中に放置し、フィルム表面への可塑剤のブリードの有無を目視で観察した。ブリードが認められるまでの日数を基準として次のように判定する。◎：60日以上。
10 ○：30日以上、60日未満。△：14日以上、30日未満。×：14日未満。

調製例1

<脂肪族ポリエステル樹脂の調製>

Dien-Starkトラップを設置した100リットル反応容器に、90モル%L-乳酸（不純物の含有量0.5モル%）10kgを150°C、7000Paにおいて3時間攪拌しながら水を留出させた後、錫末6.2gを加え、150°C、4000Paにおいてさらに2時間攪拌してオリゴマー化した。このオリゴマーに錫末28.8gとジフェニルエーテル21.1kgを加え、150°C、4700Paにおいて共沸脱水反応を行い留出した水と溶媒を水分分離機で分離して、
20 水層を逐次抜き出し、溶媒のみを反応器に戻した。2時間後（この時点での不純物の含有量は0.05モル%であった）、反応器に戻す有機溶媒を4.6kgのモレキュラーシーブ3Aを充填したカラムに通してから反応器に戻すようにして、150°C、4700Paにおいて反応を行い、ポリスチレン換算重量平均分子量12万のポリ乳酸溶液を得た。この溶液に脱水したジフェニルエーテル44kgを
25 加え希釈した後、40°Cまで冷却して、析出した結晶を濾過し、10kgのn-ヘキサンで3回洗浄して60°C、7000Paにおいて乾燥した。この粉末を0.5N塩酸12kgとエタノール12kgを加え、35°Cで1時間攪拌した後濾過

し、60℃、7000Paで乾燥して、平均粒径30μmのポリ乳酸粉末6.1kg（収率85重量%）を得た。このポリマーのポリスチレン換算重量平均分子量は約12万であった。

調製例2

5 <化合物A1（テトラアセチルジグリセリン）の調製>

ジグリセリン84g、及び無水酢酸415gを反応フラスコに入れ、強酸性イオン交換樹脂（ダウケミカル社製、商品名：ダウエックスMSC-1）2.5gを追加し、攪拌しながら80～90℃で1時間反応を行った。冷却後、イオン交換樹脂を濾別し、生成した酢酸および未反応の無水酢酸を減圧留去し、テトラアセチルジグリセリン（以下、化合物A1という）161.5gを得た。化合物A1は、一般式（1）におけるR₁～R₄が全て炭素数1のアルキル基、nは1であり、酸価が0.2、水酸基価が3.1である。

調製例3

<化合物A2（テトラオクタノイルジグリセリン）の調製>

15 反応フラスコにクロロホルム500g、ジグリセリン42g、及びオクタン酸クロライド195gを入れ、20～30℃でピリジン95gを滴下し、その後40℃で2時間攪拌し反応した。反応終了後、反応液を水洗し、クロロホルムを留去し、テトラオクタノイルジグリセリン（以下、化合物A2という）160gを得た。化合物A2は、一般式（1）におけるR₁～R₄が全て炭素数7のアルキル基、nは1であり、酸価が0.5、水酸基価が4.5である。

調製例4

<化合物A3（ペンタステアロイルトリグリセリン）の調製>

反応フラスコにクロロホルム500g、トリグリセリン24g、及びステアリン酸クロライド167gを入れ、20～30℃でピリジン43gを滴下し、その後40℃で2時間攪拌し、反応した。調製例3と同様の処理をし、ペンタステアロイルトリグリセリン（以下、化合物A3という）142gを得た。化合物A3は、一般式（1）におけるR₁～R₄が全て炭素数17のアルキル基、nは2であ

り、酸価が0.4、水酸基価が2.9である。

調製例5

<化合物A4（ドデカベヘノイルデカグリセリン）の調製>

反応フラスコにクロロホルム500g、デカグリセリン19g、及びベヘニン
5 酸クロライド108gを入れ、20～30℃でピリジン26gを滴下し、その後
40℃で2時間攪拌し、反応した。調製例3と同様の処理をし、ドデカベヘノイ
ルデカグリセリン（以下、化合物A4という）110gを得た。化合物A4は、
一般式（1）におけるR₁～R₄が全て炭素数21のアルキル基、nは9であり、
酸価が0.3、水酸基価が2.1である。

10 実施例1

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物A1を30重量部お
よびデカグリセリンオレート（理研ビタミン（株）製、商品名：ポエムJ-03
81、以下、化合物B1という）を5重量部含むペレットを、180℃において
Tダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ80μmの未延
15 伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2.5倍、次いで横方向に
3倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷
却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は1
5%であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウト
の評価を行った結果を〔表1〕に示す。

20 実施例2

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物A1を25重量部含
むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、溶融
して押し出し、厚さ60μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ
方向に2倍、次いで横方向に2.5倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、3
25 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。
得られたフィルムの結晶化度は25%であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、耐
熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行った結果を〔表1〕に示す。

実施例 3

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 2 を 5.5 重量部含むペレットを、180 °Cにおいて T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ 50 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ 5 方向に 1.5 倍、次いで横方向に 2.5 倍延伸し、130 °C で熱処理を行った後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 μm の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は 12 % であった。弾性率、 $\tan \delta$ 、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行った結果を [表 1] に示す。

実施例 4

10 調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 3 を 3.0 重量部含むペレットを、180 °Cにおいて T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ 40 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムの両面に、調製例 1 で得られたポリマーからなる厚さ 10 μm のフィルムを張り合せた後、長さ方向に 2.5 倍、次いで横方向に 3 倍延伸し、130 °C で熱処理を行つた後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 μm の延伸フィルムを得た。弾性率、 $\tan \delta$ 、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行つた結果を [表 1] に示す。

実施例 5

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 3 を 4.0 重量部含むペレットを、180 °Cにおいて T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ 60 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムの両面に、ポリブチレンサクシネートからなる厚さ 10 μm のフィルムを張り合せた後、この未延伸フィルムを長さ方向に 2.5 倍、次いで横方向に 3 倍延伸し、130 °C で熱処理を行つた後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 μm の延伸フィルムを得た。弾性率、 $\tan \delta$ 、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行つた結果を [表 1] に示す。

実施例 6

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 1 を 20 重量部含むペレットを、40 mm のインフレーション成形機（ダイス径 40 mm）にて、170 °C で成形し、折り径 150 mm、厚み 12 μm のインフレーションフィルムを得た。得られたフィルムを 140 °C で熱処理を行った後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却した。得られたフィルムの結晶化度は 18 % であった。弾性率、 $\tan \delta$ 、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行った結果を [表 1] に示す。

比較例 1

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 1 を 5 重量部含むペレットを、180 °C において T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押出し、厚さ 80 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に 2.5 倍、次いで横方向に 3.0 倍延伸し、130 °C で熱処理を行った後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 μm の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は 30 % であった。評価結果を [表 2] に示す。

比較例 2

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 1 を 70 重量部含むペレットを、180 °C において T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押出し、厚さ 70 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に 2 倍、次いで横方向に 3 倍延伸し、130 °C で熱処理を行った後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 μm の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は 15 % であった。評価結果を [表 2] に示す。

比較例 3

調製例 1 で得られたポリマー 100 重量部に対し、化合物 A 4 を 25 重量部含むペレットを、180 °C において T ダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押出し、厚さ 60 μm の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に 2 倍、次いで横方向に 2.5 倍延伸し、130 °C で熱処理を行った後、30 °C の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み 10 m の延伸フィルムを得た。得

られたフィルムの結晶化度は20%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

比較例4

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、デカグリセリンラウレート(理研ビタミン(株) 製、商品名：ポエムJ-0021、以下、化合物B2という)を15重量部含むペレットを、180°CにおいてTダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ60μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2倍、次いで横方向に3倍延伸し、130°Cで熱処理を行った後、30°Cの空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は15%であった。弾性率、 t_{an} 、 δ 、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表2〕に示す。

比較例5

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、テトラグリセリンオレート(理研ビタミン(株) 製、商品名：ポエムJ-4581、以下、化合物B3という)を50重量部含むペレットを、180°CにおいてTダイが装着された押出機を用いて混練、溶融して押し出し、厚さ80μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2.5倍、次いで横方向に3倍延伸し、130°Cで熱処理を行った後、30°Cの空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は15%であった。弾性率、 t_{an} 、 δ 、ヘイズ、耐熱温度、密着力及びブリードアウトの評価を行った結果を〔表2〕に示す。

表 1

| | 実施例 1 | 実施例 2 | 実施例 3 | 実施例 4 | 実施例 5 | 実施例 6 |
|-------------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|-----------------------|
| 化合物 A 重量部 | 種類 A 1 30 | 種類 A 1 25 | 種類 A 2 55 | 種類 A 3 30 | 種類 A 3 40 | 種類 A 1 20 |
| 化合物 B 重量部 | 種類 B 1 — |
| フィルムの構成 | 単層 | 単層 | 単層 | 多層 | 多層 | 单層 |
| 延伸倍率（倍） | 2.5 × 3.0 | 2.0 × 2.5 | 1.5 × 2.5 | 2.5 × 3.0 | 2.5 × 3.0 | 1.3 × 3.0 |
| 結晶化度（%） | 15 | 25 | 12 | — | — | 18 |
| 弾性率（Pa） | 1 × 10 ⁹ | 6 × 10 ⁸ | 6 × 10 ⁷ | 5 × 10 ⁸ | 6 × 10 ⁸ | 1.2 × 10 ⁸ |
| $\tan\delta$ | 0.4 | 0.5 | 0.6 | 0.5 | 0.4 | 0.5 |
| HAZE（%） | 0.8 | 1 | 0.6 | 0.8 | 2.5 | 0.9 |
| 密着力(g/cm ²) | 220 | 250 | 420 | 280 | 260 | 320 |
| 耐熱温度(°C) | 135 | 140 | 130 | 135 | 140 | 130 |
| ブリードアウト | ◎ | ◎ | ◎ | ◎ | ◎ | ◎ |

表2

| | | 比較例 1 | 比較例 2 | 比較例 3 | 比較例 4 | 比較例 5 |
|--------------------------|-------------------|------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|
| 化合物 A | 種類 | A 1 | A 1 | A 4 | — | — |
| | 重量部 | 5 | 70 | 25 | — | — |
| 化合物 B | 種類 | — | — | — | B 2 | B 3 |
| | 重量部 | — | — | — | 15 | 50 |
| 構成 | 単層 | 単層 | 単層 | 単層 | 単層 | 単層 |
| 延伸倍率 (倍) | 2.5×3.0 | 2.0×3.0 | 2.0×2.5 | 2.0×3.0 | 2.5×3.0 | 2.5×3.0 |
| 結晶化度 (%) | 30 | 15 | 20 | 15 | 15 | 15 |
| 弾性率 (Pa) | 2.5×10^9 | 8×10^6 | 2.4×10^9 | 8×10^8 | 1×10^8 | 1×10^8 |
| $\tan \delta$ | 0.2 | 0.8 | 0.2 | 0.4 | 0.5 | 0.5 |
| HAZE (%) | 0.8 | 0.9 | 1.1 | 0.9 | 0.8 | 0.8 |
| 密着力 (g/cm ²) | 100 | 600 | 120 | 150 | 150 | 150 |
| 耐熱温度 (°C) | 150 | 110 | 140 | 150 | 135 | — |
| ブリードアウト | ◎ | × | ◎ | ○ | × | — |

実施例 7

実施例 1 で得られたフィルムを、長さ 180 mm、幅 500 mm に切り、幅方 5 向に 2 つ折にした後、折り目の側辺の二辺を 100 °C でヒートシールすることにより、開口部の幅約 175 mm、深さ 250 mm の袋を得た。得られた袋にトマト約 500 g を充填し、袋の開口部を絞り、結束テープで固定し、包装体を得た。

実施例 8

実施例 6 で得られた折り径 150 mm、厚み 12 μm のインフレーションフィルムを長さ方向に、250 mm 間隔で、溶断温度 280 °C にて溶断シールした後、同間隔でカットすることにより、開口部の幅 150 mm、深さ 約 245 mm の袋を得た。得られた袋に人参約 500 g を充填し、袋の開口部を絞り、結束テープで固定し、包装体を得た。

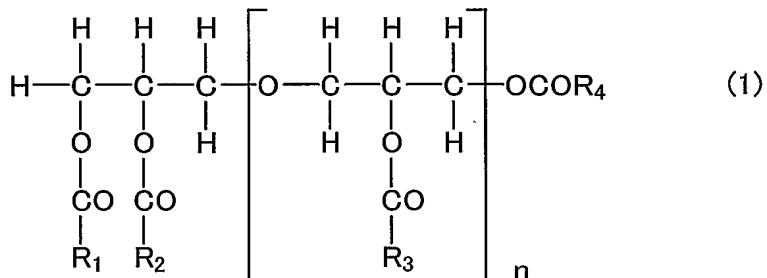
15 発明の効果

本発明に係る脂肪族ポリエステル樹脂組成物から得られた脂肪族ポリエステルフィルムは、乳酸系ポリマーが本来有する自然環境下での分解性を維持し、優れた耐熱性、柔軟性、透明性及び密着性を有し、しかも表面に可塑剤がブリードア

ウトすることがない。そのため、食品、電子、医療、薬品、化粧品等の各種包装用フィルム、農業用フィルム、土建・建築用フィルム、粘着テープ等の広範囲における資材として好適に使用し得る。使用した後、廃棄されても産業廃棄物、家庭廃棄物として蓄積することがない。

請求の範囲

1. 脂肪族ポリエステル樹脂 100 重量部に対し、式(1)



5 (式中、nは1～9の整数、R₁～R₄はそれぞれ独立に炭素数1～17のアルキル基であり、nが2以上であるとき、R₃は各ユニットで異なっていてもよい)で表される化合物の少なくとも1つ10～60重量部を含んでなる脂肪族ポリエステル樹脂組成物。

10 2. 請求の範囲第1項記載の脂肪族ポリエステル樹脂組成物からなるフィルムの層を少なくとも1層有する、脂肪族ポリエステルフィルム。

3. 脂肪族ポリエステルフィルムの、20℃における貯蔵弾性率(E')が1×10⁷～2×10⁹Paであり、貯蔵弾性率(E')に対する損失弾性率(E'')の比(E''/E')である損失正接(tan δ)が0.1～1.0である、請求の範囲第2項記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

15 4. 脂肪族ポリエステルが、ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸との共重合体から選ばれた少なくとも1種のポリエステルである、請求の範囲第2項又は3項記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

5. ポリエステルフィルムのヘイズが、膜厚10μmで、0.05～3%である、請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

20 6. ポリエステルフィルムの耐熱温度が100～170℃である、請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

7. ポリエステルフィルムの結晶化度が10～60%である、請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

8. ポリエステルフィルムの厚みが5～1000 μmである、請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルム。
9. ポリエステルフィルムが包装用フィルムである、請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルム。
- 5 10. 請求の範囲第2項～4項の何れか1項に記載の脂肪族ポリエステルフィルムを用いて、被包装物を包装した包装体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/06940

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08L67/04, C08J5/18, C08K5/103

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L67/00-67/02, C08L67/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1926-2002 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2002 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2002 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2002 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| X A | JP 2001-106805 A (Asahi Kasei Corp.), 17 April, 2001 (17.04.01), Column 1, lines 2 to 23; column 2, lines 15 to 18; column 8, lines 5 to 10 (Family: none) | 1, 2, 4-10 3 |

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

| | |
|---|--|
| * Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family |
|---|--|

| | |
|--|---|
| Date of the actual completion of the international search 04 October, 2002 (04.10.02) | Date of mailing of the international search report 15 October, 2002 (15.10.02) |
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | Authorized officer |

Facsimile No.

Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP02/06940

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C17 C08L 67/04, C08J 5/18, C08K 5/103

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C17 C08L 67/00 - 67/02, C08L 67/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2002年

日本国公開実用新案公報 1971-2002年

日本国登録実用新案公報 1994-2002年

日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|-------------------|
| X | J P 2001-106805 A (旭化成株式会社) 2001. 04. 17、第1欄第2-23行、第2欄第15-18 欄、第8欄第5-10行 (ファミリーなし) | 1、2、4- 10 3 |
| A | | |

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

04. 10. 02

国際調査報告の発送日

15.10.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

森川 聰



4 J 9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456